

**BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

20 JAN 2005

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 103 57 315.1

**Anmeldetag:** 05. Dezember 2003

**Anmelder/Inhaber:** Covion Organic Semiconductors GmbH,  
65929 Frankfurt/DE

**Bezeichnung:** Organisches Elektrolumineszenzelement

**IPC:** H 01 L, C 09 K

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 13. Januar 2005  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
Der Präsident  
Im Auftrag

  
Brosig

BEST AVAILABLE COPY

## Beschreibung

### 5 Organisches Elektrolumineszenzelement

Die vorliegende Erfindung beschreibt ein neuartiges Designprinzip für Organische Elektrolumineszenzelemente und dessen Verwendung in darauf basierenden Displays.

In einer Reihe von verschiedenartigen Anwendungen, die im weitesten Sinne der Elektronikindustrie zugerechnet werden können, ist der Einsatz organischer Halbleiter als Wirkkomponenten (= Funktionsmaterialien) seit geraumer Zeit Realität bzw. wird in naher Zukunft erwartet.

15 So finden schon seit elliichen Jahren lichtsensitive organische Materialien (z. B. Phthalocyanine) sowie organische Ladungstransportmaterialien (i. d. R. Lochtransporter auf Triarylaminbasis) Verwendung in Kopiergeräten.

Der Einsatz spezieller halbleitender organischer Verbindungen, die zum Teil auch zur Emission von Licht im sichtbaren Spektralbereich befähigt sind, steht gerade am Anfang der Markteinführung, zum Beispiel in organischen Elektrolumineszenzvorrichtungen. Deren Einzelbauteile, die Organischen-Lichtemittierenden-Dioden (OLEDs), besitzen ein sehr breites Anwendungsspektrum als:

1. weiße oder farbige Hinterleuchtungen für monochrome oder mehrfarbige Anzeigeelemente (wie z. B. im Taschenrechner, Mobiltelefone und andere tragbare Anwendungen),

2. großflächige Anzeigen (wie z. B. Verkehrsschilder, Plakate und andere Anwendungen),

3. Beleuchtungselemente in allen Farben und Formen,

4. monochrome oder vollfarbige Passiv-Matrix-Displays für tragbare Anwendungen (wie z. B. Mobiltelefone, PDAs, Camcorder und andere Anwendungen),

5. vollfarbige, großflächige hochauflösende Aktiv-Matrix-Displays für verschiedenste Anwendungen (wie z. B. Mobiltelefone, PDAs, Laptops, Fernseher und andere Anwendungen).

Für einfache LEDs enthaltende Vorrichtungen ist die Markteinführung bereits erfolgt, wie die im Markt erhältlichen Autoradios der Firma Pioneer, die Mobiltelefone der Firmen Pioneer und SNMD oder eine Digitalkamera der Firma Kodak mit "Organischem Display" belegen. Weitere derartige Produkte stehen kurz vor der Einführung. Dennoch sind hier noch deutliche Verbesserungen nötig, um diese Displays zu einer echten Konkurrenz zu den derzeit marktbeherrschenden Flüssigkristallanzeigen (LCD) zu machen bzw. diese zu überflügeln.

Eine Entwicklung hierzu, die sich in den letzten Jahren abgezeichnet hat, ist der Einsatz von metallorganischen Komplexen, die Phosphoreszenz statt Fluoreszenz zeigen [M. A. Baldo, S. Lamansky, P. E. Burrows, M. E. Thompson, S. R. Forrest, Applied Physics Letters, 1999, 75, 4-6].

Aus quantenmechanischen Gründen ist unter Verwendung metallorganischer Verbindungen eine bis zu vierfache Quanten-; Energie- und Leistungseffizienz möglich. Ob sich diese neue Entwicklung durchsetzen wird, hängt zum einen stark davon ab, ob entsprechende Device-Kompositionen gefunden werden können, die diese Vorteile (Triplett-Emission = Phosphoreszenz gegenüber Singulett-Emission = Fluoreszenz) auch in den OLEDs umsetzen können. Hier ist nicht nur die Entwicklung der metallorganischen Verbindungen selbst von Bedeutung, sondern vor allem auch von weiteren speziell hierfür benötigten Materialien, wie beispielsweise sogenannte Matrix- oder auch Lochblockiermaterialien.

Als wesentliche Bedingungen für praktische Anwendung sind hier insbesondere eine hohe operative Lebensdauer, eine hohe Stabilität gegenüber thermischer Belastung und eine niedrige Einsatz- und Betriebsspannung verbunden mit einer hohen Leistungseffizienz, um mobile Applikationen zu ermöglichen, zu nennen.

Üblicherweise besteht eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung aus mehreren Schichten, die mittels Vakuummethoden oder unterschiedlicher Druckmethoden aufeinander aufgebracht werden. Für phosphoreszierende organische Elektrolumineszenzvorrichtungen sind diese Schichten im einzelnen:

1. Eine Trägerplatte = Substrat (üblicherweise Glas oder Kunststoffolie).
2. Eine transparente Anode (üblicherweise Indium-Zinn-Oxid, ITO).

3. Eine Lochinjektions-Schicht (Hole Injection Layer = HIL): z. B. auf Basis von Kupfer-phthalocyanin (CuPc) oder leitfähigen Polymeren, wie Polyanilin (PANI) oder Polythiophen-Derivaten (wie PEDOT).

4. Eine oder mehrere Lochtransport-Schichten (Hole Transport Layer = HTL): üblicherweise auf der Basis von Triarylamin-Derivaten z. B. 4,4',4''-Tris(N-1-naphthyl)N-phenyl-amino-triphenylamin (NaphDATA) als erste Schicht und N,N'-Di(naphth-1-yl)-N,N'-diphenyl-benzidin (NPB) als zweite Lochtransportschicht.

5. Eine oder mehrere Emissions-Schichten (Emission Layer = EML): besteht üblicherweise aus mit Phosphoreszenzfarbstoffen, z. B. Tris-(phenyl-pyridyl)-Iridium (Ir(ppy)<sub>3</sub>) oder Tris-(2-benzothienyl-pyridyl)-Iridium (Ir(BTP)<sub>3</sub>), dotierten Matrixmaterialien, wie z. B. 4,4'-Bis(carbazol-9-yl)-biphenyl (CBP). Die Emissions-Schicht kann aber auch aus Polymeren, Mischungen von Polymeren, Mischungen von Polymeren und niedermolekularen Verbindungen oder Mischungen verschiedener niedermolekularer Verbindungen bestehen.

6. Eine Loch-Blockier-Schicht (Hole-Blocking-Layer = HBL): sie besteht üblicherweise aus BCP (2,9-Dimethyl-4,7-diphenyl-1,10-phenanthrolin = Bathocuproin) oder Bis-(2-methyl-8-chinolinolato)-4-(phenyl-phenolato)-aluminium-(III) (BAIq).

7. Eine Elektronentransport-Schicht (Electron Transport Layer = ETL): größtenteils auf Basis von Aluminium-tris-8-hydroxy-chinolinat (Alq<sub>3</sub>).

8. Eine Elektroneninjektions-Schicht (Electron Injection Layer = EIL) (auch teilweise Isolatorschicht (ISL) genannt): eine dünne Schicht bestehend aus einem Material mit einer hohen Dielektrizitätskonstanten, wie z. B. LiF, Li<sub>2</sub>O, BaF<sub>2</sub>, MgO, NaF.

9. Eine Kathode: hier werden in der Regel Metalle, Metallkombinationen oder Metallegierungen mit niedriger Austrittsarbeit verwendet, so z. B. Ca, Ba, Cs, Mg, Al, In, Mg/Ag.

Diese ganze Vorrichtung wird entsprechend (je nach Anwendung) strukturiert, kontaktiert und schließlich auch hermetisch versiegelt, da sich i. d. R. die Lebensdauer derartiger Vorrichtungen bei Anwesenheit von Wasser und/oder Luft drastisch verkürzt. Das Gleiche gilt auch für sogenannte invertierte Strukturen, bei denen das Licht aus der Kathode ausgekoppelt wird. Bei diesen invertierten OLEDs besteht die Anode z. B. aus Al/Ni/NiOx oder Al/Pu/PtOx oder anderen Metall/Metalloxyd-Kombinationen, die ein höchstes besetztes Molekülorbital (HOMO)

mit einer Barriere von größer 5 eV besitzen. Die Kathode besteht dabei aus den gleichen Materialien, die in Punkt 9 und 10 beschrieben sind, mit dem Unterschied, daß das Metall, wie z. B. Ca, Ba, Mg, Al, In usw., sehr dünn und damit transparent ist. Die Schichtdicke liegt unter 50 nm, besser unter 30 nm, noch besser unter 10 nm. Auf diese transparente Kathode kann noch ein weiteres transparentes Material aufgebracht werden, z. B. ITO (Indium-Zinn-Oxid), IZO (Indium-Zink-Oxid) usw..

Je nach Deviceaufbau können auch mehrere dieser Schichten zusammenfallen, bzw. es muß nicht notwendigerweise jede dieser Schichten vorhanden sein.

Allerdings gibt es immer noch erhebliche Probleme, die einer dringenden Verbesserung bedürfen:

1. So ist v. a. die OPERATIVE LEBENSDAUER von OLEDs immer noch gering, so daß bis dato nur einfache Anwendungen kommerziell realisiert werden konnten.

2. Diese relativ kurze Lebensdauer ergibt noch ein Folgeproblem: Gerade für VOLLFARB-Anwendungen ("full-color-displays"), d. h. Displays, welche keine Segmentierungen aufweisen, sondern über die ganze Fläche alle Farben darstellen können, ist es besonders ungünstig, wenn hier die einzelnen Farben unterschiedlich schnell altern, wie dies derzeit der Fall ist. Dies führt dazu, daß schon vor Ende der o. g. Lebensdauer (die in der Regel durch einen Abfall auf 50 % der Anfangshelligkeit definiert ist), es zu einer deutlichen Verschiebung des Weiß-Punkts kommt, d. h. die Farbtöne der Darstellung im Display sehr schlecht wird. Um dies zu umgehen, definieren einige Displayanwender die Lebensdauer als 70 % oder 90 %-Lebensdauer (d. h. Abfall der Anfangshelligkeit auf 70 % bzw. auf 90 % des Anfangswertes). Dies führt aber dazu, daß die Lebensdauer noch kürzer wird.

3. Die Effizienzen, insbesondere die Leistungseffizienz (gemessen in lm/W), von OLEDs sind zwar akzeptabel, aber auch hier sind – gerade für tragbare Anwendungen ("portable applications") – immer noch Verbesserungen erwünscht.

4. Die Farbkoordinaten von OLEDs sind nicht gut genug. Besonders die Kombination von guten Farbkoordinaten mit hoher Effizienz muß noch verbessert werden.

5. Die Alterungsprozesse gehen generell mit einem Anstieg der Leistung einher. Dieser Effekt macht spannungsgetriebene Organische Elektrolumineszenzvorrichtungen, z. B. Displays oder Anzeige-Elemente, schwierig bzw. unmöglich. Eine stromgetriebene Ansteuerung ist aber gerade in diesem Fall aufwendiger und teurer.

6. Die benötigte Betriebsspannung ist gerade bei effizienten phosphoreszierenden OLEDs recht hoch und muß daher weiter verringert werden, um die Leistungseffizienz zu verbessern. Das ist gerade für tragbare Anwendungen von großer Bedeutung.

7. Der benötigte Betriebsstrom ist ebenfalls in den letzten Jahren verringert worden, muß aber noch weiter verringert werden, um die Leistungseffizienz zu verbessern. Das ist gerade für tragbare Anwendungen besonders wichtig.

8. Der Aufbau der OLEDs ist durch die Vielzahl der organischen Schichten komplex und aufwendig.

15

Die oben genannten Gründe machen Verbesserungen bei der Herstellung von OLEDs notwendig. Hierbei haben insbesondere Verbesserungen im Bereich der Matrix- und Lochblockiermaterialien große Bedeutung.

20 Bei phosphoreszierenden OLEDs wird üblicherweise eine Lochblockierschicht (HBL) folgend auf die Emitterschicht zur Steigerung der Effizienz und Lebensdauer verwendet. Diese Devicestrukturen werden zumeist nach dem Kriterium der maximalen Effizienz optimiert. Dabei kommt häufig BCP (Bathocuproin) als Lochblockiermaterial (HBM) zum Einsatz, womit sehr gute Effizienzen erzielt werden (z. B. D. F. O'Brien *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 1999, 74, 442), allerdings mit dem großen Nachteil, daß die Lebensdauer der OLEDs mit BCP stark eingeschränkt ist.

25 T. Tsutsui *et al.* (*Japanese J. Appl. Phys.* 1999, 38, L1502) geben als Grund für die eingeschränkte Lebensdauer die geringe Stabilität von BCP an, so daß diese Devices nicht in hochwertigen Displayanwendungen Verwendung finden können. Ein weiteres Lochblockiermaterial ist Bis-(2-methyl-8-hydroxychinolato)-(4-phenylphenolato)-aluminium(III) (BALq). Damit konnten die Stabilität und die Lebensdauer der Devices deutlich verbessert werden, allerdings mit dem Nebeneffekt, daß die Quanteneffizienz der Devices mit BALq deutlich (ca. 40 %) 30

niedriger als bei BCP (T. Watanabe *et al.*, *Proc. SPIE* 2001, 4105, 175). Kwong *et al.* (*Appl. Phys. Lett.* 2002, 81, 162) erzielten damit Lebensdauern von 10000 h mit Tris(phenylpyridyl)iridium(III). Allerdings zeigte dieses Device nur eine Effizienz von 19 cd/A, was weit hinter dem Stand der Technik zurückliegt. Somit sind mit BALq zwar gute Lebensdauern möglich, insgesamt ist es jedoch kein zufriedenstellendes Lochblockiermaterial, da die erreichte Effizienz zu niedrig ist.

Wie aus dem oben beschriebenen Aufbau einer phosphoreszierenden OLED hervorgeht, ist dieser sehr aufwendig, da viele Schichten, die wiederum aus vielen verschiedenen Materialien bestehen, nacheinander aufgebracht werden müssen, was den Herstellungsprozeß von kommerziellen OLEDs sehr kompliziert und komplex macht.

Aus dieser Beschreibung geht klar hervor, daß die bislang verwendeten

15 Lochblockiermaterialien (HBM), wie z. B. BCP oder BALq, zu unbefriedigenden Nebeneffekten führen. Es besteht also weiterhin ein Bedarf an Lochblockiermaterialien, die in OLEDs zu guten Effizienzen führen, gleichzeitig aber auch zu hohen Lebensdauern. Es wurde nun überraschend gefunden, daß OLEDs, die bestimmte – im Folgenden aufgeführte – Materialklassen als

20 Lochblockiermaterialien enthalten, deutliche Verbesserungen gegenüber dem Stand der Technik aufweisen. Mit diesen Materialklassen ist es möglich, gleichzeitig hohe Effizienzen und gute Lebensdauern zu erhalten, was mit Materialien gemäß dem Stand der Technik nicht möglich ist. Zudem wurde gefunden, daß mit den neuen Lochblockiermaterialien nicht notwendigerweise eine Elektronentransportschicht verwendet werden muß, was einen technologischen Vorteil darstellt, und daß dadurch zusätzlich die Betriebsspannungen deutlich gesenkt werden können, was einer höheren Leistungseffizienz entspricht.

Die Verwendung von Spirofluoren enthaltenden Ketonen, Iminen, Phosphinoxiden, Sulfoxiden und Sulfonen ist bereits in DE 10317556.3 und DE 10330761.3 beschrieben. Allerdings wird dort nur die Verwendung als Triplettmatrixmaterial näher ausgeführt, so daß nicht ersichtlich ist, wie diese Verbindungen ansonsten nutzbringend eingesetzt werden könnten.

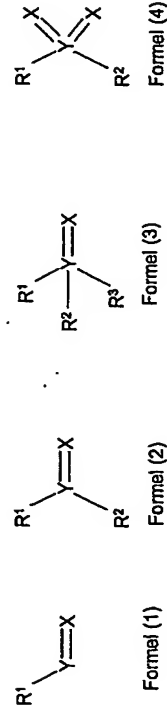
Gegenstand der Erfindung ist eine organische Elektrolumineszenzeinrichtung, enthaltend eine Anode, eine Kathode und mindestens eine Emissionsschicht, enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches mit mindestens einem phosphoreszierenden Emittler dotiert ist, und mindestens eine Lochblockierschicht, enthaltend ein Lochblockiermaterial B, dadurch gekennzeichnet, daß das Lochblockiermaterial B wenigstens eine chemische Struktureinheit der Formel  $Y=X$  enthält, wobei X mindestens ein nicht-bindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest Y für NR, O, S, Se, Te und R für einen organischen Rest mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen und für OH, OR, NH<sub>2</sub>, NHR und NR<sub>2</sub> steht, und wobei der Rest Y für C, P, As, Sb, Bi, S, Se oder Te steht, mit der Maßgabe, daß das Matrixmaterial A nicht identisch dem Lochblockiermaterial B ist.

Auch wenn das aus dem oben gesagten hervorgeht, sei hier nochmal explizit darauf hingewiesen, daß A und B dieselbe Struktureinheit  $Y=X$  enthalten können, ansonsten aber verschieden sind.

Das oben und im Folgenden verwendete Symbol „ $\text{=}$ “ steht für eine Doppelbindung im Sinne der Lewis-Schreibweise von Zwei-Elektronen-Zwei-Zentren-Bindungen.

Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzeinrichtung, dadurch gekennzeichnet, daß sie ein Lochblockiermaterial B entsprechend Formel (1) bis (4), gemäß Schema 1, enthält,

Schema 1



wobei die verwendeten Symbole folgende Bedeutung haben:

Y ist gleich C in Formel (2) und P, As, Sb, Bi in den Formeln (1) und (3) und S, Se, Te, in Formeln (1), (2) und (4);  
X ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden NR<sup>4</sup>, O, S, Se, Te;

bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H, F, CN, N(R<sup>4</sup>)<sub>2</sub>, eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl-, Alkoxy- oder Thioalkoxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die mit R<sup>5</sup> substituiert oder auch unsubstituiert sein kann, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte -CH<sub>2</sub>-Gruppen durch -R<sup>6</sup>C=CR<sup>6</sup>-, -C≡C-, Si(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, Ge(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, Sn(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, C=O, C=S, C=Se, C=NR<sup>6</sup>, -O-, -S-, -NR<sup>6</sup>- oder -CONR<sup>6</sup>- ersetzt sein können und wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br, I, CN oder NO<sub>2</sub> ersetzt sein können, oder ein aromatisches oder heteroaromatisches System oder eine Aryloxy- oder Heteroaryloxygruppe mit 1 bis 40 aromatischen C-Atomen, die durch ein oder mehrere Reste R<sup>5</sup> substituiert sein können, wobei mehrere Substituenten R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und/oder R<sup>3</sup> miteinander ein mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem bilden können, oder ein über eine bivalente Gruppe -Z- gebundenes aromatisches bzw. heteroaromatisches System oder eine Aryloxy- oder Heteroaryloxygruppe jeweils mit 1 bis 40 aromatischen C-Atomen, wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br oder I ersetzt sein können oder die durch einen oder mehrere nicht aromatische Reste R substituiert sein kann, wobei mehrere Substituenten R ein weiteres mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem aufspannen können, oder;

ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl- oder Alkoxykette mit 1 bis 22 C-Atomen, in der auch ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch -R<sup>6</sup>C=CR<sup>6</sup>-, -C≡C-, Si(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, Ge(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, Sn(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub>, -NR<sup>6</sup>-, -O-, -S-, -CO-O-, -O-CO-O- ersetzt sein können, wobei auch ein oder mehrere H-Atome durch Fluor ersetzt sein können, eine Aryl-, Heteroaryl- oder Aryloxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, welche auch durch ein oder mehrere Reste R<sup>6</sup> substituiert sein kann oder OH oder N(R<sup>5</sup>)<sub>2</sub>;  
ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden R<sup>4</sup> oder CN, B(R<sup>6</sup>)<sub>2</sub> oder Si(R<sup>6</sup>)<sub>3</sub>;

$R^6$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden in aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 C-Atomen;

Z ist ein geradkettiger, verzweigter oder cyclischer, bevorzugt konjugierter Rest mit 1 bis 40 C-Atomen, der bevorzugt in Konjugation mit den beiden anderen Substituenten steht, wobei bevorzugt die Anzahl der Atome von Z, die die Gruppe gemäß Formel (1) und den aromatischen Rest verknüpfen, eine gerade Zahl beträgt, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch -O-, -S- oder -NR<sup>1</sup>- ersetzt sein können oder ein oder mehrere C-Atome durch einen Rest R<sup>1</sup> oder Halogen substituiert sein können;

und mit der Maßgabe, daß die Molmasse des Lochblockiermaterials B größer 150 g/mol ist.

Unter einem aromatischen oder heteroaromatischen System im Sinne dieser Erfindung soll ein System verstanden werden, das nicht notwendigerweise nur aromatische bzw. heteroaromatische Gruppen enthält, sondern in dem auch mehrere aromatische oder heteroaromatische Gruppen durch eine kurze, nicht aromatische Einheit, wie z.B. ein sp<sup>3</sup>-hybridisiertes C-, N-, O-, etc. Atom unterbrochen sein können. So sollen also beispielsweise auch Systeme wie 9,9'-Spirofluoren, 9,9-Diaryluoren, Triarylamine etc. im Sinne dieser Anwendung als aromatische Systeme verstanden werden.

Ganz besonders bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzeinrichtung, dadurch gekennzeichnet, daß Y = C, P oder S und X = O entspricht.

Dabei kann es auch bevorzugt sein, wenn das Lochblockiermaterial B mehr als eine Einheit Y=X bzw. mehr als eine Einheit gemäß Formel (1) bis (4) enthält.

Bevorzugt enthält die Lochblockierschicht mindestens 50% des Lochblockiermaterials B, besonders bevorzugt mindestens 80%, ganz besonders bevorzugt besteht diese nur aus dem Lochblockiermaterial B.

Als besonders geeignete Lochblockiermaterialien B haben sich Verbindungen erwiesen, die nicht planar aufgebaut sind. An der Struktureinheit der Form Y=X können entsprechende Substituenten für eine Abweichung der Gesamtstruktur von der Planarität sorgen. Dies ist insbesondere dann der Fall, wenn mindestens einer der Substituenten R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und / oder R<sup>4</sup> wenigstens ein sp<sup>3</sup>-hybridisiertes Kohlenstoff-, Silicium-, Germanium- und / oder Stickstoffatom enthält, welches dadurch näherungsweise tetraedrisch oder im Fall von Stickstoff pyramidale Bindungsgeometrie aufweist.

Um eine deutliche Abweichung von der Planarität zu erreichen, ist es bevorzugt, wenn wenigstens eines der sp<sup>3</sup>-hybridisierten Atome ein sekundäres, tertiäres oder quartäres Atom ist, besonders bevorzugt ein tertiäres oder quartäres Atom, im Fall von Kohlenstoff, Silicium oder Germanium ganz besonders bevorzugt ist quartäres Atom ist.

Unter einem sekundären, tertiären oder quartären Atom wird ein Atom mit zwei, drei bzw. vier Substituenten ungleich Wasserstoff verstanden.

Bevorzugt sind Verbindungen, die in mindestens einem der Reste R ein 9,9'-Spirofluorenderivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und / oder 2,7- und / oder 2,2'- und / oder 2,2',7- und / oder 2,2',7,7'-Position, ein 9,9-disubstituiertes

Fluorenderivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und / oder 2,7-Position, ein 6,6- und / oder 12,12-di- oder tetrasubstituiertes Indenofluorenderivat, ein

Triptycenderivat, bevorzugt verknüpft über die 9- und / oder 10-Position, ein

Dihydrophenanthren-Derivat, bevorzugt verknüpft über die 2- und / oder 2,7-Position, ein Hexaarylbenzolderivat, bevorzugt verknüpft über die p-Position am / an den

Aromaten, oder ein Tetraarylmethanderivat, bevorzugt verknüpft über die p-Position am / an den Aromaten, enthalten.

Besonders bevorzugt sind Verbindungen, die in mindestens einem der Reste R ein 9,9'-Spirofluorenderivat enthalten.

Weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist die Verwendung von

Verbindungen der chemischen Struktureinheit der Formel Y=X, wobei X mindestens ein nicht-blindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest X für NR, O, S, Se, Te und R für einen organischen Rest mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen und für OH,

OR, NH<sub>2</sub>, NHR und NR<sub>2</sub> steht, und wobei der Rest Y für C, P, Si, Ge, Sn, Pb, Bi, S, Se oder Te steht als Lochblockiermaterial in einer organischen Leuchtvorrichtung.

Bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung, dadurch

gekennzeichnet, daß die Matrixmaterialien A aus den Klassen der Carbazole, beispielsweise gemäß den Patentanmeldungen WO 00/057676, EP 01/202358 und WO 02/074015, der Ketone und Imine, beispielsweise gemäß der Patentanmeldung DE 10317556.3, der Phosphinoxide, Phosphinsulfide, Phosphinselenide, der Phosphazene, der Sulfone, der Sulfoxide, beispielsweise gemäß der Patentanmeldung DE 10330761.3, der Silane, der polyodalen Metall-Komplexe, beispielsweise gemäß der Patentanmeldung DE 10310887.4, oder der Oligophenylene basierend auf Spirofluorenen, beispielsweise gemäß den Patentanmeldungen EP 676461 und WO 99/40051, ausgewählt sind. Besonders bevorzugt sind Ketone, Phosphinoxide, Sulfoxide.

15

Diese Auswahl ist für den Erfindungsgegenstand jedoch nicht maßgeblich. So können auch weitere, altbekannte Materialien, wie Derivate des Carbazols, verwendet werden.

Die oben beschriebene OLED kann noch weitere Schichten enthalten, wie zum Beispiel eine Lochinjektionsschicht, Lochtransportschicht, Elektroneninjectionsschicht und/oder Elektronentransportschicht. Es sei allerdings darauf verwiesen, daß nicht notwendigerweise alle diese Schichten vorhanden sein müssen. So wurde gefunden, daß erfindungsgemäße OLEDs, die eine Lochblockierschicht, bestehend aus einem Lochblockiermaterial B, enthalten, weiterhin vergleichbar gute Effizienzen und Lebensdauern bei geringerer Betriebsspannung liefern, wenn keine Elektroneninjektions- und Elektronentransportschichten verwendet werden.

Ebenso bevorzugt sind organische Elektrolumineszenzvorrichtungen, die eine Lochblockierschicht enthalten, die direkt an die Elektroneninjectionsschicht bzw. Kathode angrenzt.

Weiterhin ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß als phosphoreszierender Emittor eine Verbindung enthalten ist, die mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 36 und kleiner 84 aufweist.

5 Besonders bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emittor mindestens ein Element der Ordnungszahl größer 56 und kleiner 80, ganz besonders bevorzugt Molybdän, Wolfram, Rhenium, Ruthenium, Osmium, Rhodium, Iridium, Palladium, Platin, Silber, Gold und / oder Europium, beispielsweise gemäß den Patentanmeldungen WO 98/01011, US 02/0034656, US 03/0022019, WO 00/70655, WO 01/41512, WO 02/02714, WO 02/15645, EP 1 191613, EP 1 191 612, EP 1 191 614, WO 03/040257 und DE 10215010.9 enthält.

10

Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß die Glastemperatur T<sub>g</sub> des Lochblockiermaterials B größer als 100 °C, bevorzugt größer 120 °C, ganz besonders bevorzugt größer 140 °C ist.

15

Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Sublimationsverfahren beschichtet werden. Dabei werden die niedermolekularen Materialien in Vakuum-Sublimationsanlagen bei einem Druck kleiner 10<sup>-5</sup> mbar, bevorzugt kleiner 10<sup>-6</sup> mbar, besonders bevorzugt kleiner 10<sup>-7</sup> mbar aufgedampft.

20

Bevorzugt ist ebenfalls eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem OVPD (Organic Vapor Phase Deposition) Verfahren oder mit Hilfe einer Trägergasublimation beschichtet werden, die dem Fachmann bekannt sind. Dabei werden die niedermolekularen Materialien bei einem Druck zwischen 10<sup>-5</sup> mbar und 1 bar aufgebracht.

25

30 Weiterhin bevorzugt ist eine organische Elektrolumineszenzvorrichtung dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem beliebigen Druckverfahren, wie z. B. Flexodruck oder Offsetdruck, besonders bevorzugt LITI (Light

Induced Thermal Imaging, Thermotransferdruck) oder Ink-Jet (Tintenstrahl-Druck), beschichtet werden.

Die oben beschriebenen emittierenden Vorrichtungen weisen nun folgende überraschende Vorteile gegenüber dem Stand der Technik auf:

1. Die Effizienz entsprechender Vorrichtungen wird höher im Vergleich zu Systemen, die nicht dem erfindungsgemäßen Design folgen.
2. Die Stabilität entsprechender Vorrichtungen wird höher im Vergleich zu Systemen, die nicht dem erfindungsgemäßen Design folgen.
3. Die Betriebsspannungen werden wesentlich erniedrigt. Dadurch erhöht sich die Leistungseffizienz. Dies gilt insbesondere, wenn keine separate Elektronentransportschicht verwendet wird.

4. Die Schichtaufbau ist einfacher, da mindestens eine organische Schicht, nämlich die Elektronentransportschicht weniger verwendet werden kann, was auch zur Folge hat, daß der Produktionsaufwand geringer wird. Dies ist ein erheblicher Vorteil im Produktionsprozeß, da bei der herkömmlichen Herstellungsweise in der Regel für jede organische Schicht eine separate Aufdampfanlage verwendet wird, wodurch mindestens eine derartige Anlage somit eingespart wird/komplett entfällt.

Im vorliegenden Anmeldetext und auch in den weiteren folgenden Beispielen wird nur auf organische Leuchtdioden und die entsprechenden Displays abgezielt. Trotz dieser Beschränkung der Beschreibung ist es für den Fachmann ohne weiteres erfinderisches Zutun möglich, das entsprechende erfindungsgemäße Design auch für andere, verwandte Vorrichtungen, z. B. für organische Solarzellen (O-SCs), organische Feldeffekttransistoren (O-FETs) oder auch organische Laserdioden (O-Laser), um nur einige weitere Anwendungen zu nennen, zu verwenden. Diese sind ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

#### 30 Beispiele:

Herstellung und Charakterisierung von organischen Elektrolumineszenzvorrichtungen, die dem erfindungsgemäßen Aufbau entsprechen.

Die Herstellung von OLEDs erfolgte nach dem im folgenden skizzierten allgemeinen Verfahren. Dieses mußte im Einzelfall auf die jeweiligen Gegebenheiten (z. B. Schichtdickenvariation, um optimale Effizienz bzw. Farbe zu erreichen) angepaßt werden.

- 5 Erfindungsgemäße Elektrolumineszenzvorrichtungen können, wie beispielsweise in der Patentanmeldung DE10330761.3 beschrieben, dargestellt werden.

In den folgenden Beispielen werden die Ergebnisse verschiedener OLEDs vorgestellt. Der grundlegende Aufbau, wie die verwendeten Materialien und Schichtdicken, außer der EMLs und HBLs, waren zur besseren Vergleichbarkeit identisch.

Analog dem o. g. allgemeinen Verfahren, wurden emittierende OLEDs mit folgendem Aufbau erzeugt:

- |                       |  |
|-----------------------|--|
| PEDOT (HIL)           | 60 nm (aus Wasser aufgeschleudert; PEDOT bezogen von H.C. Starck; Poly[3,4-ethylenedioxy-2,5-thiophen])    |
| NaphDATA (HTM)        | 20 nm (aufgedampft; NaphDATA bezogen von SynTec; 4,4',4''-Tris(N-1-naphthyl-N-phenyl-amino)-triphenylamin) |
| S-TAD (HTM)           | 20 nm (aufgedampft; S-TAD hergestellt nach WO99/12888; 2,2',7,7'-Tetrakis(diphenylamino)-spirobifluoren)   |
| Emitter-Schicht (EML) | 30 nm (genauer Aufbau siehe Beispiele in Tabelle 1)  |

Lochblocklerschicht (HBL) 10 nm (siehe Beispiele in Tabelle 1)

- |                        |  |
|------------------------|--|
| AlQ <sub>3</sub> (ETL) | 10 nm (aufgedampft; AlQ <sub>3</sub> bezogen von SynTec; Tris(chinoalinato)aluminium(III)) |
| Ba-Al (Kathode)        | 3 nm Ba, darauf 150 nm Al  |

Diese nicht optimierten OLEDs wurden standardmäßig charakterisiert; hierfür wurden die Elektrolumineszenzspektren, die Effizienz (gemessen in cd/A), die Leistungseffizienz (gemessen in lm/W) in Abhängigkeit der Helligkeit, berechnet aus Strom-Spannungs-Helligkeit-Kennlinien (IUL-Kennlinien), und die Lebensdauer bestimmt. Unter Lebensdauer versteht man die Zeit, nach der die Anfangshelligkeit der OLED, bei einer konstanten Stromdichte von 10 mA/cm<sup>2</sup>, auf die Hälfte gesunken ist.



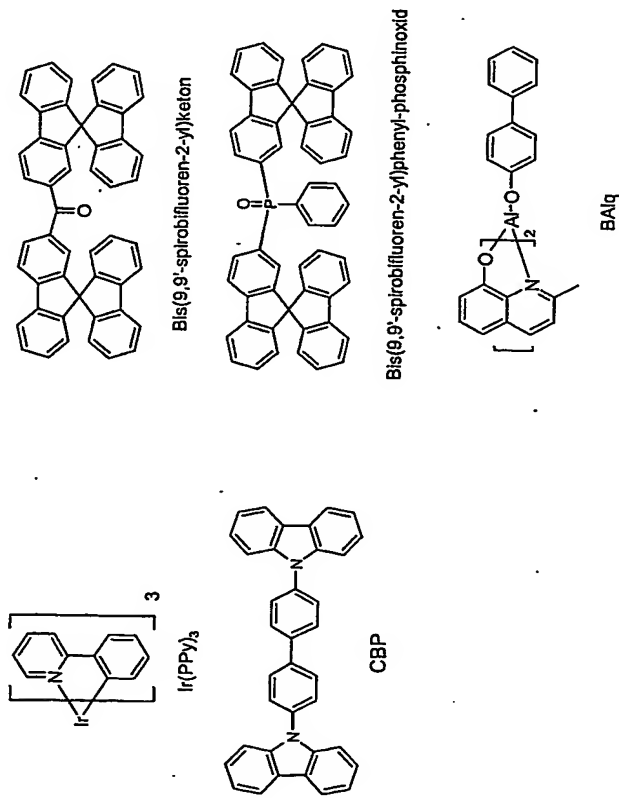
In der untenstehenden Tabelle 1 sind die Ergebnisse verschiedener Beispiele zusammengefasst. Die Zusammensetzung der gesamten EMLs und der HBLs inklusive der entsprechenden Schichtdicken ist aufgeführt. Die dotierten

phosphoreszierenden EMLs enthalten beispielsweise als Matrixmaterial A1 die

Verbindung Bis(9,9'-spirobifluoren-2-yl)keton, die Verbindung A2 Bis(9,9'-spirobifluoren-2-yl)-phenyl-phosphinoxid oder CBP, als Emittier die Verbindungen  $\text{Ir(PPy)}_3$  und als Lochblockiermaterial die Verbindung B1 Bis(9,9'-spirobifluoren-2-yl)keton oder die Verbindung B2 Bis(9,9'-spirobifluoren-2-yl)-phenyl-phosphinoxid.

Als Vergleichsbeispiele dienen OLEDs, die als Matrixmaterial CBP (4,4'-Bis(carbazolyl)biphenyl) bzw. Bis(9,9'-spirofluoren-2-yl)keton und als Lochblockiermaterial B-Alq enthalten.

In der untenstehenden Abbildung sind die entsprechenden Strukturformeln der in der Tabelle aufgeführten Substanzen dargestellt:



**Tabelle 1:**

Experiment	EML	HBL	ETL	Max. Effizienz (cd/A)	Max. Leistungseffizienz (lm/W)	Spannung (V) bei 100 cd/m <sup>2</sup>	Lebensdauer (h) bei 10 mA/cm <sup>2</sup>
Beispiel 1a	A1:10% lpppy	B1 (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (20 nm)	29,1	16,5	4,7	630
Beispiel 1b	A2:10% lpppy	B2 (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (20 nm)	34,0	26,9	4,1	590
Beispiel 1c	CBP:10% lpppy	B2 (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (20 nm)	29,7	17,2	4,5	650
Beispiel 1d	CBP:10% lpppy	Balq (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (20 nm)	18,3	8,5	5,1	250
Beispiel 1e	A1:10% lpppy	Balq (10 nm)	AlQ <sub>3</sub> (20 nm)	25,2	14,8	5,7	510
Beispiel 2a	A1:10% lpppy	B1 (10 nm)	—	30,2	19,1	3,5	710
Beispiel 2b	A2:10% lpppy	B2 (10 nm)	—	32,7	27,7	3,5	490
Beispiel 2c	CBP:10% lpppy	B2 (10 nm)	—	27,2	15,9	5,1	330
Beispiel 2d	CBP:10% lpppy	Balq (10 nm)	—	16,5	8,8	5,3	180
Beispiel 2e	A1:10% lpppy	Balq (10 nm)	—	24,8	14,7	5,2	240
Vergleich							

Alle OLEDs zeigen eine grüne Emission, die vom Dotanden Ir (s. Beispiel 1a) abhängt. Die höchsten photometrischen Effizienzen erhält man in einem Device, das das Matrixmaterial A2 enthält, in Kombination mit dem HBM B2 (s. Beispiel 1b). Da hier auch die Spannungen niedrig sind, erhält man auch eine sehr gute Leistungseffizienz.

Auch der Einsatz der Materialien A1 und B1 (s. Beispiel 1a) zeigt eine deutliche Verbesserung gegenüber dem Stand der Technik, einem Device mit dem Matrixmaterial CBP und dem HBM Balq (s. Beispiel 1d). Dies zeigt sich auch in den entsprechenden Lebensdauern, die von 250 h auf 630 h ansteigen.

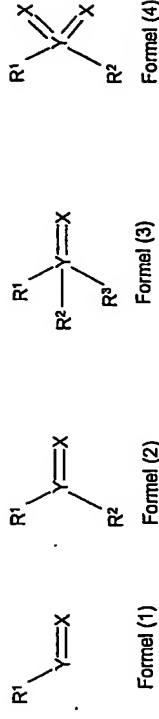
Ein ähnlicher Trend zeigt sich, wenn man die ETL weglässt. Bei den OLEDs nach dem Stand der Technik nimmt die photometrische Effizienz ab und die Lebensdauer verkürzt sich deutlich im Vergleich zu OLEDs mit ETL. Dies ist nicht der Fall bei den OLEDs gefertigt nach dem neuen Designprinzip. Hier sinken vor allem die Spannungen wodurch sich die Leistungseffizienz verbessert. Des weiteren ist der Einbruch in der Lebensdauer nicht so stark wie bei den Vergleichsbeispielen.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß OLEDs gefertigt nach dem neuen Designprinzip eine höhere Effizienz bei niedrigeren Spannungen und längeren Lebensdauer aufweisen, wie man leicht Tabelle 1 entnehmen kann.

1. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, enthaltend eine Anode, eine Kathode und mindestens eine Emissionsschicht, enthaltend mindestens ein Matrixmaterial A, welches mit mindestens einem phosphoreszierenden Emittor dotiert ist, und mindestens eine Lochblockierschicht, enthaltend ein Lochblockiermaterial B, dadurch gekennzeichnet, daß das Lochblockiermaterial B wenigstens eine chemische Struktureinheit der Formel  $Y=X$  enthält, wobei X mindestens ein nichtbindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest Y für NR, O, S, Se, Te und R für einen organischen Rest mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen und für OH, OR,  $NH_2$ , NHR und  $NR_2$  steht, und wobei der Rest Y für C, P, As, Sb, Bi, S, Se oder Te steht, mit der Maßgabe, daß das Matrixmaterial A nicht identisch dem Lochblockiermaterial B ist.

2. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie ein Lochblockiermaterial B entsprechend Formel (1) bis (4), gemäß Schema 1, enthält,

Schema 1



20

wobei die verwendeten Symbole folgende Bedeutung haben:

Y ist gleich C in Formel (2) und P, As, Sb, Bi in Formel (1) und (3) und S, Se, Te, in Formel (1), (2) und (4);

X  $NR^4$ , O, S, Se, Te;

25  $R^1, R^2, R^3$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschiedenen H, F, CN,  $N(R^4)_2$ , eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl-, Alkoxy- oder Thioalkoxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, die mit  $R^5$  substituiert oder auch unsubstituiert sein kann, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte  $-CH_2-$ -Gruppen durch  $-R^6C=CR^6-$ ,  $-C\equiv C-$ ,  $Si(R^6)_2$ ,

$\text{Ge}(\text{R}^6)_2$ ,  $\text{Sn}(\text{R}^6)_2$ ,  $\text{C}=\text{O}$ ,  $\text{C}=\text{S}$ ,  $\text{C}=\text{Se}$ ,  $\text{C}=\text{NR}^6$ ,  $-\text{C}(\text{NR}^6)-$  oder  $-\text{CONR}^6-$  ersetzt sein können und wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br, I, CN oder  $\text{NO}_2$  ersetzt sein können, oder ein aromatisches oder heteroaromatisches System oder eine Aryloxy- oder Heteroaryloxygruppe mit 1 bis 40 aromatischen C-Atomen, die durch ein oder mehrere Reste  $\text{R}^5$  substituiert sein können, wobei mehrere Substituenten  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$  und/oder  $\text{R}^3$  miteinander ein mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem bilden können, oder ein über eine bivalente Gruppe  $-\text{Z}-$  gebundenes aromatisches bzw. heteroaromatisches System oder eine Aryloxy- oder Heteroaryloxygruppe jeweils mit 1 bis 40 aromatischen C-Atomen, wobei ein oder mehrere H-Atome durch F, Cl, Br oder I ersetzt sein können oder die durch einen oder mehrere nicht aromatische Reste R substituiert sein kann, wobei mehrere Substituenten R ein weiteres mono- oder polycyclisches, aliphatisches oder aromatisches Ringsystem aufspannen können, oder;

ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden eine geradkettige, verzweigte oder cyclische Alkyl- oder Alkoxykette mit 1 bis 22 C-Atomen, in der auch ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch  $-\text{R}^6\text{C}=\text{CR}^6-$ ,  $-\text{C}\equiv\text{C}-$ ,  $\text{Si}(\text{R}^6)_2$ ,  $\text{Ge}(\text{R}^6)_2$ ,  $\text{Sn}(\text{R}^6)_2$ ,  $-\text{NR}^6-$ ,  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$ ,  $-\text{CO}-\text{O}-$ ,  $-\text{O}-\text{CO}-\text{O}-$  ersetzt sein können, wobei auch ein oder mehrere H-Atome durch Fluor ersetzt sein können, eine Aryl-, Heteroaryl- oder Aryloxygruppe mit 1 bis 40 C-Atomen, welche auch durch ein oder mehrere Reste  $\text{R}^6$  substituiert sein kann oder OH oder  $\text{N}(\text{R}^5)_2$ ;

$\text{R}^5$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden  $\text{R}^4$  oder CN,  $\text{B}(\text{R}^6)_2$  oder  $\text{Si}(\text{R}^6)_3$ ;

$\text{R}^6$  ist bei jedem Auftreten gleich oder verschieden H oder ein aliphatischer oder aromatischer Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 C-Atomen;

Z ist ein geradkettiger, verzweigter oder cyclischer, bevorzugt konjugierter Rest mit 1 bis 40 C-Atomen, der bevorzugt in Konjugation

en beiden anderen Substituenten steht, wobei bevorzugt die Anzahl der Atome von Z, die die Gruppe gemäß Formel (1) und den aromatischen Rest verknüpfen, eine gerade Zahl beträgt, wobei ein oder mehrere nicht benachbarte C-Atome durch  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$  oder  $-\text{NR}^1-$  ersetzt sein können oder ein oder mehrere C-Atome durch einen Rest  $\text{R}^1$  oder Halogen substituiert sein können;

und mit der Maßgabe, daß die Molmasse des Lochblockiermaterials B größer 150 g/mol ist.

3. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, gemäß Anspruch 1 und/oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß  $\text{Y} = \text{C}$ , P oder S und  $\text{X} = \text{O}$  entspricht.

4. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochblockierschicht mindestens 50% des Lochblockiermaterials B enthält.

5. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung, gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochblockierschicht nur aus dem Lochblockiermaterial B besteht.

6. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Verbindungen der Lochblockiermaterialien B nicht planar aufgebaut sind.

7. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß im Lochblockiermaterial B mindestens einer der Substituent  $\text{R}^1$  bis  $\text{R}^4$  mindestens ein  $\text{sp}^2$ -hybridisiertes Kohlenstoffatom enthält.

8. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß das  $\text{sp}^2$ -hybridisierte Kohlenstoffatom ein sekundäres, tertiäres oder quartäres Kohlenstoffatom ist.

9. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das  $sp^3$ -hybridisierte Kohlenstoffatom ein quartäres Kohlenstoffatom ist.

10. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß in mindestens einem der Reste  $R^1$  bis  $R^4$  ein 9,9'-Spirofluorenderivat, ein 9,9'-disubstituiertes Fluorenderivat, ein Indenofluorenderivat, ein Triptycenderivat, 9,10-Dihydrophenanthrenderivat, ein Hexaarylbenzolderivat oder ein Tetraarylmethanderivat enthalten ist.

11. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß in mindestens einem der Reste  $R^1$  bis  $R^4$  ein 9,9'-Spirofluorenderivat enthalten ist.

12. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Matrixmaterialien A aus der Gruppe der Carbazole, Silane, der polypodalen Metall-Komplexe, der Oligophenylene basierend auf Spirofluorenen, der Ketone, Imine, Phosphinoxide, Phosphinsulfide, Phosphinselenide, Phosphazene, Sulfone, oder der Sulfoxide ausgewählt sind.

13. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß die Lochblockierschicht direkt an die Elektroneninjektionsschicht bzw. Kathode angrenzt.

14. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß als phosphoreszierender Emittler eine Verbindung enthalten ist, die mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 36 und kleiner 84 aufweist.

15. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emittler mindestens ein Atom der Ordnungszahl größer 56 und kleiner 80 aufweist.

16. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 14 und/oder 15, dadurch gekennzeichnet, daß der phosphoreszierende Emittler Molybdän, Wolfram, Rhenium, Ruthenium, Osmium, Rhodium, Iridium, Palladium, Platin, Silber, Gold und / oder Europium enthält.

17. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß die Glasatemperatur  $T_g$  des Lochblockiermaterials B größer als 100 °C ist.

18. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 17 dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Sublimationsverfahren hergestellt werden.

19. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 18 dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem OVPD (Organic Vapour Phase Deposition) Verfahren aufgebracht werden.

20. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 18, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit einem Druck-Verfahren beschichtet werden.

21. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß Anspruch 20 dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem Ink-Jet (Tintenstrahl Druck) Verfahren beschichtet werden.

22. Organische Elektrolumineszenzvorrichtung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß eine oder mehrere Schichten mit dem LITI (Light Induced Thermal Imaging) Verfahren beschichtet werden.

23. Verwendung von Verbindungen der chemischen Struktureinheit der Formel  $Y=X$ , wobei X mindestens ein nicht-bindendes Elektronenpaar aufweist und wobei der Rest X für NR, O, S, Se, Te und R für einen organischen Rest mit 1 bis 22 Kohlenstoffatomen und für OH, OR, NH<sub>2</sub>, NHR und NR<sub>2</sub> steht, und wobei der Rest Y

für C, P, As, Sb, Bi, S, Se oder Te steht als Lochblockiermaterial in einem elektronischen Bauteil, insbesondere in einer organischen Leuchtdiode, organischen Solarzelle, einem organischen Feldeffekttransistor, organischen Dünnschichttransistor, einer organischen integrierten Schaltung oder einer organischen Laserdiode.

24. Organische Solarzelle, organischer Feldeffekttransistor, organischer Dünnschichttransistor, organische integrierte Schaltung, organische Laserdiode, dadurch gekennzeichnet, daß der Aufbau einen oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22 genügt.

Zusammenfassung

C03044

## Organisches Elektrolumineszenzelement

5 Die vorliegende Erfindung betrifft die Verbesserung phosphoreszierender organischer Elektrolumineszenzvorrichtungen, indem in der Lochblockierschicht Materialien gemäß Formel (1) bis (4) gemäß Schema 1 verwendet werden.

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/EP04/013312

International filing date: 24 November 2004 (24.11.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: DE  
Number: 103 57 315.1  
Filing date: 05 December 2003 (05.12.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 08 February 2005 (08.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**